

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
5. Juli 2001 (05.07.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 01/48074 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: C08K 13/02, C08L 69/00 // (C08K 13/02, 5:523, 3:34)

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGESSELLSCHAFT; 51368 Leverkusen (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/12568

(22) Internationales Anmeldedatum:  
12. Dezember 2000 (12.12.2000)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
199 62 930.7 24. Dezember 1999 (24.12.1999) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BAYER AKTIENGESSELLSCHAFT [DE/DE]; 51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): SEIDEL, Andreas [DE/DE]; Kroschstrasse 14, 41542 Dormagen (DE). ECKEL, Thomas [DE/DE]; Pfauenstrasse 51, 41540 Dormagen (DE). ZOBEL, Michael [DE/DE]; Linnicher Strasse 10, 40547 Düsseldorf (DE). DERR, Torsten [DE/DE]; Johann-Hendel-Strasse 15, 41542 Dormagen (DE). WITTMANN, Dieter [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirchner-Strasse 41, 51375 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— Mit internationalem Recherchenbericht.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

WO 01/48074 A1

(54) Title: FLAME-RESISTANT POLYCARBONATE MOLDING COMPOSITIONS CONTAINING HIGH-PURITY TALC

(54) Bezeichnung: FLAMMWIDRIGE POLYCARBONAT-FORMMASSEN MIT TALK BESONDERER REINHEIT

(57) Abstract: The invention relates to polycarbonate compositions that contain talc as a filler and that are characterized by an excellent flame resistance and improved rigidity also at small wall thicknesses, a good environmental stress cracking resistance, that is resistance to chemicals, and low tool abrasion and low juicing during manufacturing.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft mit Talk gefüllte Polycarbonat-Zusammensetzungen, die sich neben einer exzellenten Flammwidrigkeit auch bei kleinen Wandstärken durch eine verbesserte Rigidität, eine gute Spannungsrissbeständigkeit, d.h. Chemikalienbeständigkeit, sowie durch einen geringen Werkzeugabrieb und geringer Belagsbildung bei der Verarbeitung auszeichnen.

**Flammwidrige Polycarbonat-Formmassen mit Talk besonderer Reinheit**

Die vorliegende Erfindung betrifft mit Talk gefüllte Polycarbonat-Zusammen-  
5 setzungen, die sich neben einer exzellenten Flammwidrigkeit auch bei kleinen Wand-  
stärken durch eine verbesserte Rigidität, eine gute Spannungsrissbeständigkeit, d.h.  
Chemikalienbeständigkeit, sowie durch einen geringen Werkzeugabrieb und geringer  
Belagsbildung ("juicing") bei der Verarbeitung auszeichnen.

10 Gefüllte bzw. verstärkte PC/ABS-Formmassen sind bekannt.

In EP-A 0 391 413 werden zum Beispiel PC/ABS-Formmassen, enthaltend anorga-  
nische Füllstoffe mit speziellen geometrischen Eigenschaften beschrieben, wobei die  
Formmassen durch einen geringeren linearen thermischen Ausdehnungskoeffi-  
15 zienten, eine hohe Zähigkeit bei Stoßbeanspruchung sowie eine hohe Wärmeform-  
beständigkeit spezifiziert werden. Als erfindungsgemäße Füllstoffe werden Talk und  
nicht-kalzinierte Tonmaterialien beschrieben. Flammenschutzmittel werden lediglich  
allgemein in einer Reihe von Zusatzstoffen erwähnt.

20 In EP-A 0 452 788 werden talkhaltige PC/ABS-Formmassen beschrieben, die sich  
besonders durch eine matte Materialoberfläche auszeichnen. Flammenschutzmittel  
werden auch hier lediglich allgemein erwähnt.

Auch flammwidrig ausgerüstete, gefüllte bzw. verstärkte PC/ABS-Formmassen sind  
25 bereits bekannt.

In JP-A 0 219 9162 werden verstärkte, flammwidrige PC/ABS-Formmassen be-  
schrieben, die mit einem halogenhaltigen Flammenschutzmittel mit einem Halogenge-  
halt von 0,5 - 15 Gew.-% ausgerüstet sind. Talk wird allgemein als möglicher Füll-  
30 stoff erwähnt.

EP-A 0 363 608 und EP-A 0 640 655 befassen sich mit PC/ABS-Formmassen, die durch Oligophosphorsäureester bzw. Mischungen aus Oligo- und Monophosphorsäureester flammwidrig ausgerüstet sind. Es wird allgemein erwähnt, dass die Formmassen Verstärkungsmaterialien enthalten können. Beispiele verstärkter Formmassen werden jedoch nicht offenbart.

In WO 99/07778 werden verstärkte, mit organischen Phosphorverbindungen flammwidrig ausgerüstete PC/ABS-Formmassen beschrieben, deren Polycarbonatanteil ein Gemisch zweier aromatischer Polycarbonate mit unterschiedlicher Lösungsviskosität darstellt. Als Verstärkungstoff wird ausschließlich der Einsatz von Glasfasern anhand von Beispielen demonstriert. Diese führen zu einem unerwünschten Werkzeugabrieb bei der Verarbeitung der Formmasse. Die WO 99/07778 lehrt, dass bei Verwendung bestimmter Gemische von Polycarbonaten unterschiedlicher Viskositäten PC/ABS-Formmassen mit besseren E-Modul, Kerbschlagzähigkeit und Verarbeitungsverhalten erhalten werden.

In EP-A 0 754 531 wird darauf hingewiesen, dass der Einsatz von faserförmigen Füllstoffen mit einem großen L/D-Verhältnis zu Produkten mit anisotropen Eigenschaften (Zugfestigkeit, Steifigkeit, linearer thermischer Ausdehnungskoeffizient, Schrumpfungsverhältnis) führt, was oft unerwünschte Folgen wie Verzug, Deformation bei Erwärmung, etc. nach sich zieht. Es wird eine PC/ABS-Formmasse beschrieben, welche durch Einsatz von speziellen Oligophosphorsäureestern flammwidrig ausgerüstet und durch einen Füllstoff mit Blättchenstruktur verstärkt ist. Speziell werden Beispiele mit Glasschuppen, Micas und Mischungen daraus als Füllstoff offenbart. Talk wird nicht explizit als Füllstoff genannt. EP-A 754 531 lehrt, dass die beschriebenen Formmassen sich durch geringe Deformation bei Temperaturschwankungen auszeichnen, was einen Einsatz für Hochpräzisionsteile ermögliche. Des weiteren werden als Vorteile eine geringe Neigung zum Ausbluten des Flammenschutzmittels sowie zur Belagsbildung im Spritzgusswerkzeug genannt.

In JP-A 0 731 6411 werden PC/ABS-Formmassen beschrieben, die als Flamm-  
schutzmittel 1 - 30 % eines aromatischen Monophosphats und als Füllstoff 1 - 20 % eines  
kalzinierten Talks mit einem mittleren Partikeldurchmesser von 2 µm oder kleiner  
enthalten. Die Formmassen zeichnen sich durch gute Verarbeitbarkeit, Zähigkeit und  
5 Wärmeformbeständigkeit sowie einen exzellenten Flammenschutz aus. Die Erfahrung  
lehrt jedoch, dass Monophosphate zum Ausbluten sowie zur unerwünschten Bildung  
von Werkzeugbelägen bei der Spritzgussverarbeitung neigen.

US-A 5,849,827 und WO 99/07788 offenbaren flammwidrige thermoplastische  
10 Formmassen, basierend auf Polycarbonat, die feinst verteilte anorganische Pulver  
enthalten. Talk wird nicht erwähnt. Es wird beschrieben, dass durch den Zusatz der  
feinverteilten anorganischen Pulver die Nachbrennzeiten bei 1,6 mm nach UL 94 V  
und damit die Flammsechzeigenschaften verbessert werden.

15 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Verbesserung der Flammwidrigkeit (Ver-  
ringerung der Nachbrennzeiten und Abtropfneigung im UL 94 V-Test) bei dünnen  
Wandstärken, insbesondere bei 1,5 mm und kleiner, bei gleichzeitiger Erhöhung der  
Materialsteifigkeit, die bei dünnwandigen Formteilen besonders wichtig ist. Weiter-  
hin sollen die Formmassen eine gute Spannungsrissbeständigkeit, gute Hydrolysebe-  
20 ständigkeit, eine geringe Verzugsneigung, gute Fließfähigkeit, Wärmeformbestän-  
digkeit und Zähigkeit, sowie bei der Verarbeitung einen vernachlässigbaren Werk-  
zeugabrieb und eine vernachlässigbare Belagsbildung durch Ausbluten des Flamm-  
schutzmittels bei der Verarbeitung aufweisen.

25 Es wurde nun gefunden, dass schlagzähmodifizierte Polycarbonat-Zusammen-  
setzungen, die den unten beschriebenen speziellen Talk enthalten, die gewünschten  
Eigenschaften aufweisen. Das Eigenschaftsprofil der erfindungsgemäßen Zusammen-  
setzungen ermöglicht insbesondere einen Einsatz zur Herstellung von dünnwandigen  
Formteilen, insbesondere für Anwendungen, die einen sicheren Flammschutz  
30 erfordern.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind somit Polycarbonat-Zusammensetzungen enthaltend Schlagzähmodifikator, mindestens ein phosphorhaltiges Flammenschutzmittel und

- 5 0,05 bis 40, vorzugsweise 0,5 bis 30 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 1 bis 20 Gew.-Teile bezogen auf die Gesamtzusammensetzung eines speziellen hochreinen Talks mit einem MgO-Gehalt von 28 bis 35 Gew.-%, bevorzugt von 30 bis 33, besonders bevorzugt 30,5 bis 32 Gew.-% sowie einem SiO<sub>2</sub>-Gehalt von 55 bis 65 Gew.-%, bevorzugt von 58 bis 64 Gew.-%, besonders bevorzugt 60 bis 62,5 Gew.-%, jeweils  
10 bezogen auf den Talk.

Besonders bevorzugte Talktypen zeichnen sich des Weiteren durch einen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Gehalt von kleiner als 5 Gew.-%, insbesondere kleiner als 1 Gew.-%, besonders kleiner als 0,7 Gew.-% bezogen auf den Talk, aus.

15

Bevorzugt sind Polycarbonat-Zusammensetzungen enthaltend

- 20 A) 40 bis 98 Gew.-Teile, vorzugsweise 45 bis 95 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 50 bis 90 Gew.-Teile mindestens eines aromatischen Polycarbonats,
- B) 0,5 bis 50, vorzugsweise 1 bis 35, besonders bevorzugt 1,5 bis 25 Gew.-Teile mindestens eines Pfropfpolymerisats,
- 25 C) 0,5 bis 40, insbesondere 2 bis 20 Gew.-Teile mindestens eines Phosphorhaltigen Flammenschutzmittels,
- D) 0,05 bis 40, insbesondere 0,5 bis 30 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 1 bis 20 Gew.-Teile eines Talks gemäß obiger Definition.
- 30 Die Summe der Gewichtsteile aller Komponenten (A bis D sowie gegebenenfalls weiterer Bestandteile) ergibt dabei 100.

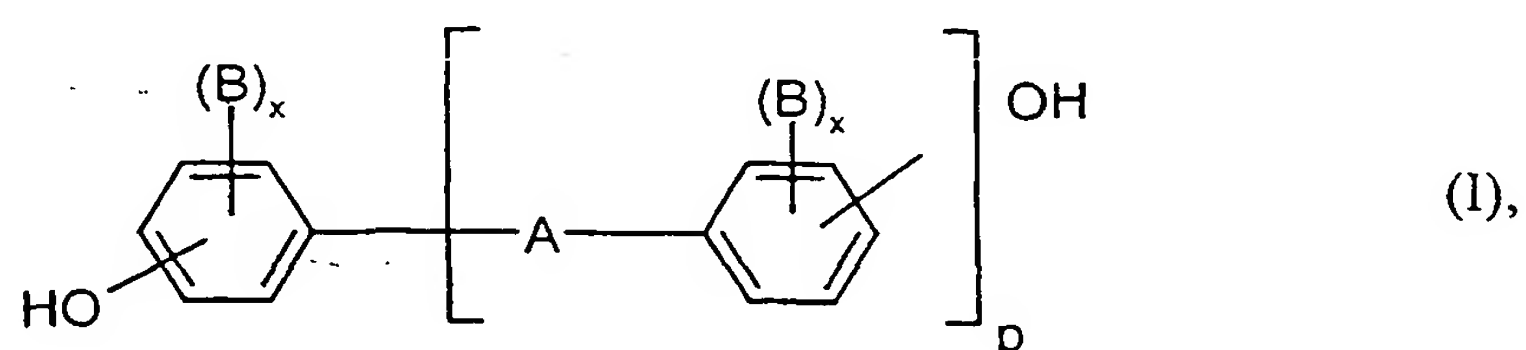
Ganz besonders bevorzugte Polycarbonat-Zusammensetzungen zeichnen sich insbesondere dadurch aus, dass sie bei Wandstärken kleiner oder gleich 1,5 mm, vorzugsweise bei Wandstärken von 1,2 mm oder kleiner, den UL 94V-Test mit der  
5 Bewertung V-O bestehen.

### Komponente A

Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und/oder aromatische Polyester-  
10 estercarbonate gemäß Komponente A sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren herstellbar (zur Herstellung aromatischer Polycarbonate siehe beispielsweise Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Interscience Publishers, 1964 sowie die DE-AS 1 495 626, DE-OS 2 232 877, DE-OS 2 703 376, DE-OS 2 714 544, DE-OS 3 000 610, DE-OS 3 832 396; zur Herstellung aromati-  
15 scher Polyester-  
15 scher Polycarbonate z. B. DE-OS 3 077 934).

Die Herstellung aromatischer Polycarbonate erfolgt z. B. durch Umsetzung von Diphenolen mit Kohlensäurehalogeniden, vorzugsweise Phosgen und/oder mit aromatischen Dicarbonsäuredihalogeniden, vorzugsweise Benzoldicarbonsäuredihalogeniden, nach dem Phasengrenzflächenverfahren, gegebenenfalls unter Verwendung  
20 von Kettenabbrechern, beispielsweise Monophenolen und gegebenenfalls unter Verwendung von trifunktionellen oder mehr als trifunktionellen Verzweigern, beispielsweise Triphenolen oder Tetraphenolen.

25 Diphenole zur Herstellung der aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen Polyester-  
25 carbonate sind vorzugsweise solche der Formel (I)

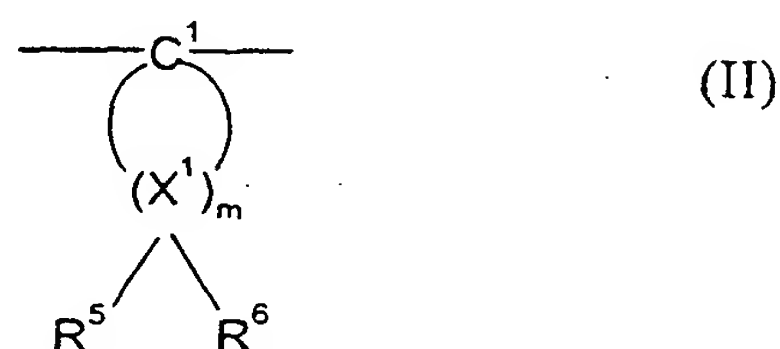




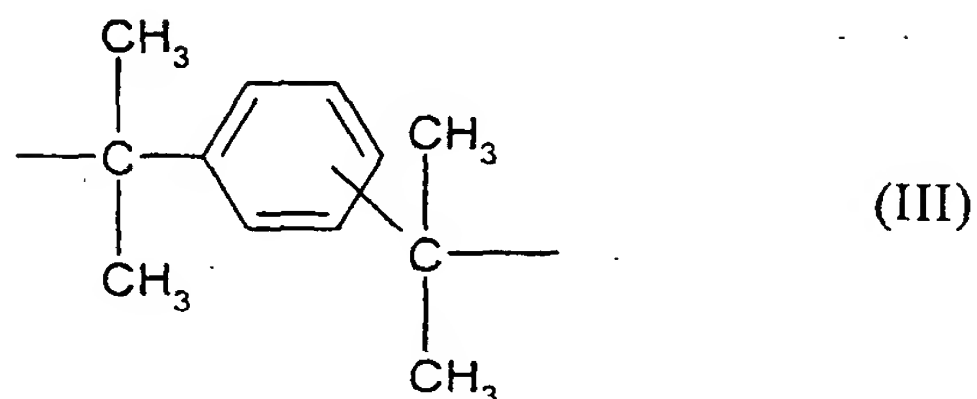
wobei

- 5 A eine Einfachbindung, C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkylen, C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyliden, C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalky-  
den, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen, an das weitere aromatische  
gegebenenfalls Heteroatome enthaltende Ringe kondensiert sein können,

oder ein Rest der Formel (II) oder (III)



10



- 15 B jeweils C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, vorzugsweise Methyl, Halogen, vorzugsweise Chlor  
und/oder Brom

x jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,

p 1 oder 0 sind, und

- 20 R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> für jedes X<sup>1</sup> individuell wählbar, unabhängig voneinander Wasserstoff  
oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl oder Ethyl,

X<sup>1</sup> Kohlenstoff und

m eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten, mit der Maßgabe, dass an mindestens einem Atom  $X^1$ ,  $R^5$  und  $R^6$  gleichzeitig Alkyl sind.

Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenole, Bis-  
5 (hydroxyphenyl)- $C_1$ - $C_5$ -alkane, Bis-(hydroxyphenyl)- $C_5$ - $C_6$ -cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone und  $\alpha,\alpha$ -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole sowie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

10 Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, Bisphenol-A, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3.3.5-trimethylcyclohexan, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfid, 4,4'-Dihydroxydiphenyl-sulfon sowie deren di- und tetrabromierten oder chlorierten  
15 Derivate wie beispielsweise 2,2-Bis(3-Chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan oder 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

Insbesondere bevorzugt ist 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan (Bisphenol-A).

20 Es können die Diphenole einzeln oder als beliebige Mischungen eingesetzt werden.

Die Diphenole sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren erhältlich.

25 Für die Herstellung der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate geeignete Kettenabbrecher sind beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder 2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-(1,3-Tetramethylbutyl)-phenol gemäß DE-OS 2 842 005 oder Monoalkylphenol bzw. Dialkylphenole mit insgesamt 8 bis 20 C-Atomen in den Alkylsubstituenten, wie 3,5-di-tert.-Butyl-  
30 phenol, p-iso-Octylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol und 2-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol. Die Menge an einzusetzen-



den Kettenabbrechern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol-%, und 10 Mol-%, bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate haben mittlere Gewichtsmittel-  
5 molekulargewichte ( $M_w$ , gemessen z. B. durch Ultrazentrifuge oder Streulichtmes-  
sung) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise 15 000 bis 80 000.

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate können in bekannter Weise ver-  
zweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 Mol-%, bezo-  
10 gen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an dreifunktionellen oder mehr als  
dreifunktionellen Verbindungen, beispielsweise solchen mit drei und mehr phenoli-  
schen Gruppen.

Geeignet sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate. Zur Herstel-  
15 lung erfindungsgemäßer Copolycarbonate gemäß Komponente A können auch 1 bis  
25 Gew.-%, vorzugsweise 2,5 bis 25 Gew.% (bezogen auf die Gesamtmenge an ein-  
zusetzenden Diphenolen) Polydiorganosiloxane mit Hydroxy-aryloxy-Endgruppen  
eingesetzt werden. Diese sind bekannt (s. beispielsweise US-Patent 3 419 634) bzw.  
nach literaturbekannten Verfahren herstellbar. Die Herstellung Polydiorganosiloxan-  
20 haltiger Copolycarbonate wird z. B. in DE-OS 3 334 782 beschrieben.

Bevorzugte Polycarbonate sind neben den Bisphenol-A-Homopolycarbonaten die  
Copolycarbonate von Bisphenol-A mit bis zu 15 Mol-%, bezogen auf die Molsum-  
men an Diphenolen, anderen als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannten  
25 Diphenolen, insbesondere 2,2-Bis(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

Aromatische Dicarbonsäuredihalogenide zur Herstellung von aromatischen Poly-  
estercarbonaten sind vorzugsweise die Disäuredichloride der Isophthalsäure, Tere-  
phthalsäure, Diphenylether-4,4'-dicarbonsäure und der Naphthalin-2,6-dicarbonsäure.

30

Besonders bevorzugt sind Gemische der Disäuredichloride der Isophthalsäure und der Terephthalsäure im Verhältnis zwischen 1:20 und 20:1.

5 Bei der Herstellung von Polyestercarbonaten wird zusätzlich ein Kohlensäurehalogenid, vorzugsweise Phosgen als bifunktionelles Säurederivat mitverwendet.

Als Kettenabbrecher für die Herstellung der aromatischen Polyestercarbonate kommen außer den bereits genannten Monophenolen noch deren Chlorkohlensäureester sowie die Säurechloride von aromatischen Monocarbonsäuren, die gegebenenfalls  
10 durch  $C_1$ - $C_{22}$ -Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können, sowie aliphatische  $C_2$ - $C_{22}$ -Monocarbonsäurechloride in Betracht.

Die Menge an Kettenabbrechern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol-%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrecher auf Mole Diphenole und im Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrecher auf Mole Dicarbonsäuredichloride.  
15

Die aromatischen Polyestercarbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

20 Die aromatischen Polyestercarbonate können sowohl linear als auch in bekannter Weise verzweigt sein (siehe dazu ebenfalls DE-OS 2 940 024 und DE-OS 3 007 934).

Als Verzweigungsmittel können beispielsweise 3- oder mehrfunktionelle Carbonsäurechloride, wie Trimesinsäuretrichlorid, Cyanursäuretrichlorid, 3,3',4,4'-Benzophenon-tetracarbonsäuretrichlorid, 1,4,5,8-Napthalintetracarbonsäuretrichlorid oder Pyromellithsäuretrichlorid, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% (bezogen auf eingesetzte Dicarbonsäuredichloride) oder 3- oder mehrfunktionelle Phenole, wie Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten, 2,4-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis[4,4-bis(4-hydroxy-  
25  
30

phenyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol, Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, 2,6-Bis(2-hydroxy-5-methyl-benzyl)-4-methyl-phenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Tetra-(4-[4-hydroxyphenyl-isopropyl]-phenoxy)-methan, 1,4-Bis[4,4'-dihydroxytri-phenyl]-methyl]-benzol, in  
5 Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% bezogen auf eingesetzte Diphenole verwendet werden. Phenolische Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt, Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden eingetragen werden.

10 In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Carbonatstruktureinheiten beliebig variieren. Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbonatgruppen bis zu 100 Mol-%, insbesondere bis zu 80 Mol-%, besonders bevorzugt bis zu 50 Mol-%, bezogen auf die Summe an Estergruppen und Carbonatgruppen. Sowohl der Ester- als auch der Carbonatanteil der aromatischen Polyestercarbonate  
15 kann in Form von Blöcken oder statistisch verteilt im Polykondensat vorliegen.

Die relative Lösungsviskosität ( $\eta_{rel}$ ) der aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate liegt im Bereich 1,18 bis 1,4, vorzugsweise 1,20 bis 1,32 (gemessen an Lösungen von 0,5 g Polycarbonat oder Polyestercarbonat in 100 ml Methylenchlorid-  
20 Lösung bei 25°C).

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate können allein oder im beliebigen Gemisch eingesetzt werden.

**Komponente B**

Die Komponente B umfasst ein oder mehrere Pfröppolymerisate von

5     B.1     5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 90 Gew.-%, wenigstens eines Vinylmonomeren  
auf

10     B.2     95 bis 5, vorzugsweise 70 bis 10 Gew.-% einer oder mehrerer Pfröpfgrund-  
lagen mit Glasübergangstemperaturen  $< 10^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $< 0^{\circ}\text{C}$ , beson-  
ders bevorzugt  $< -20^{\circ}\text{C}$ .

Die Pfröpfgrundlage B.2 hat im allgemeinen eine mittlere Teilchengröße ( $d_{50}$ -Wert)  
von 0,05 bis 10  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 0,1 bis 5  $\mu\text{m}$ , besonders bevorzugt 0,2 bis 1  $\mu\text{m}$ .

15     Monomere B.1 sind vorzugsweise Gemische aus

20     B.1.1   50 bis 99 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaro-  
maten (wie beispielsweise Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlor-  
styrol) und/oder Methacrylsäure-( $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ )-Alkylester (wie z.B. Methylmeth-  
acrylat, Ethylmethacrylat) und

25     B.1.2   1 bis 50 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile wie Acrylnitril und  
Methacrylnitril) und/oder (Meth)Acrylsäure-( $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ )-Alkylester (wie z.B.  
Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat) und/oder Derivate (wie  
Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise Maleinsäu-  
reanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

30     Bevorzugte Monomere B.1.1 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere  
Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol und Methylmethacrylat, bevorzugte Monomere B.1.2 sind  
ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid  
und Methylmethacrylat.

Besonders bevorzugte Monomere sind B.1.1 Styrol und B.1.2 Acrylnitril.

5 Für die Pfropfpolymerisate B geeignete Pfropfgrundlagen B.2 sind beispielsweise Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke, also solche auf Basis Ethylen/Propylen und gegebenenfalls Dien, Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuke.

10 Bevorzugte Pfropfgrundlagen B.2 sind Dienkautschuke (z. B. auf Basis Butadien, Isopren etc.) oder Gemische von Dienkautschuken oder Copolymerisate von Dienkautschuken oder deren Gemischen mit weiteren copolymerisierbaren Monomeren (z.B. gemäß B.1.1 und B.1.2), mit der Maßgabe, dass die Glasübergangstemperatur der Komponente B.2 unterhalb  $<10^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $<0^{\circ}\text{C}$ , besonders bevorzugt  $<-10^{\circ}\text{C}$  liegt.

15

Besonders bevorzugt ist reiner Polybutadienkautschuk.

20 Besonders bevorzugte Polymerisate B sind z.B. ABS-Polymerisate (Emulsions-, Masse- und Suspensions-ABS), wie sie z. B. in der DE-OS 2 035 390 (=US-PS 3 644 574) oder in der DE-OS 2 248 242 (=GB-PS 1 409 275) bzw. in Ullmann, Enzyklopädie der Technischen Chemie, Bd. 19 (1980), S. 280 ff. beschrieben sind. Der Gelanteil der Pfropfgrundlage B.2 beträgt mindestens 30 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 40 Gew.-% (in Toluol gemessen).

25 Die Pfropfcopolymerisate B werden durch radikalische Polymerisation, z.B. durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation, vorzugsweise durch Emulsions- oder Massepolymerisation hergestellt.

30 Besonders geeignete Pfropfkautschuke sind auch ABS-Polymerisate, die durch Redox-Initiierung mit einem Initiatorsystem aus organischem Hydroperoxid und Ascorbinsäure gemäß US-P 4 937 285 hergestellt werden.

Da bei der Pfropfreaktion die Pfropfmonomeren bekanntlich nicht unbedingt vollständig auf die Pfropfgrundlage aufgepfropft werden, werden erfindungsgemäß unter Pfropfpolymerisaten B auch solche Produkte verstanden, die durch (Co)Polymerisation der Pfropfmonomere in Gegenwart der Pfropfgrundlage gewonnen werden und bei der Aufarbeitung mit anfallen.

Geeignete Acrylatkautschuke gemäß B.2 der Polymerisate B sind vorzugsweise Polymerisate aus Acrylsäurealkylestern, gegebenenfalls mit bis zu 40 Gew.-%, bezogen auf B.2 anderen polymerisierbaren, ethylenisch ungesättigten Monomeren. Zu den bevorzugten polymerisierbaren Acrylsäureestern gehören C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylester, beispielsweise Methyl-, Ethyl-, Butyl-, n-Octyl- und 2-Ethylhexylester; Halogenalkylester, vorzugsweise Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkyl-ester, wie Chlorethylacrylat sowie Mischungen dieser Monomeren.

Zur Vernetzung können Monomere mit mehr als einer polymerisierbaren Doppelbindung copolymerisiert werden. Bevorzugte Beispiele für vernetzende Monomere sind Ester ungesättigter Monocarbonsäuren mit 3 bis 8 C-Atomen und ungesättigter einwertiger Alkohole mit 3 bis 12 C-Atomen, oder gesättigter Polyole mit 2 bis 4 OH-Gruppen und 2 bis 20 C-Atomen, wie z.B. Ethylenglykoldimethacrylat, Allylmethacrylat; mehrfach ungesättigte heterocyclische Verbindungen, wie z.B. Trivinyl- und Triallylcyanurat; polyfunktionelle Vinylverbindungen, wie Di- und Trivinylbenzole; aber auch Triallylphosphat und Diallylphthalat.

Bevorzugte vernetzende Monomere sind Allylmethacrylat, Ethylenglykoldimethacrylat, Diallylphthalat und heterocyclische Verbindungen, die mindestens 3 ethylenisch ungesättigte Gruppen aufweisen.

Besonders bevorzugte vernetzende Monomere sind die cyclischen Monomere Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat, Triacryloylhexahydro-s-triazin, Triallylbenzole. Die



Menge der vernetzten Monomere beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf die Pfropfgrundlage B.2.

5 Bei cyclischen vernetzenden Monomeren mit mindestens 3 ethylenisch ungesättigten Gruppen ist es vorteilhaft, die Menge auf unter 1 Gew.-% der Pfropfgrundlage B.2 zu beschränken.

Bevorzugte "andere" polymerisierbare, ethylenisch ungesättigte Monomere, die neben den Acrylsäureestern gegebenenfalls zur Herstellung der Pfropfgrundlage B.2  
10 dienen können, sind z. B. Acrylnitril, Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, Acrylamide, Vinyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkylether, Methylmethacrylat, Butadien. Bevorzugte Acrylatkautschuke als Pfropfgrundlage B.2 sind Emulsionspolymerisate, die einen Gelgehalt von mindestens 60 Gew.-% aufweisen.

15 Weitere geeignete Pfropfgrundlagen gemäß B.2 sind Silikonkautschuke mit pfropfaktiven Stellen, wie sie in den DE-OS 3 704 657, DE-OS 3 704 655, DE-OS 3 631 540 und DE-OS 3 631 539 beschrieben werden.

20 Der Gelgehalt der Pfropfgrundlage B.2 wird bei 25°C in einem geeigneten Lösungsmittel bestimmt (M. Hoffmann, H. Krömer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg Thieme-Verlag, Stuttgart 1977).

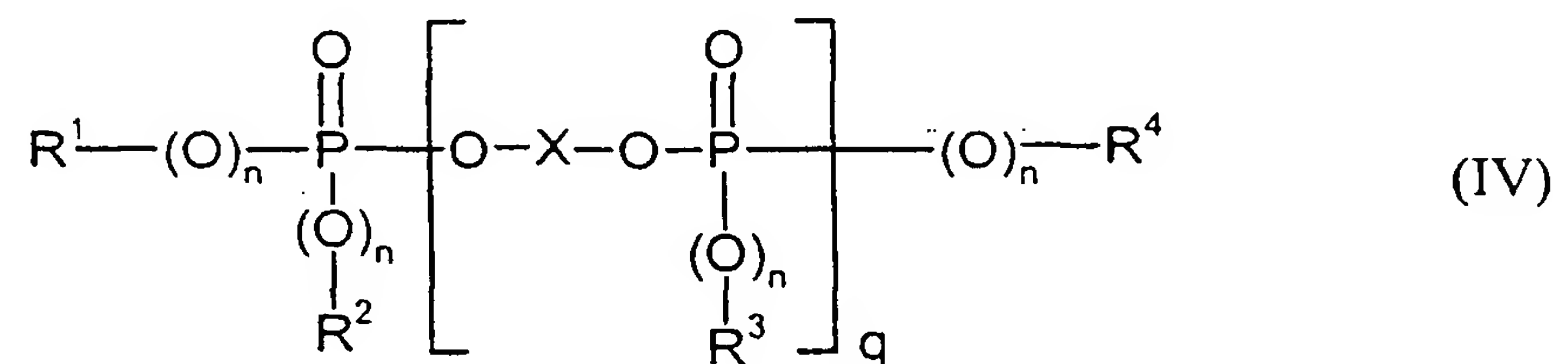
Die mittlere Teilchengröße  $d_{50}$  ist der Durchmesser, oberhalb und unterhalb dessen jeweils 50 Gew.-% der Teilchen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugennmessung  
25 (W. Scholtan, H. Lange, Kolloid, Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782-1796) bestimmt werden.

Komponente C

Phosphorhaltige Flammenschutzmittel im erfindungsgemäßen Sinne sind bevorzugt ausgewählt aus den Gruppen der Mono- und oligomeren Phosphor- und Phosphonsäureester, Phosponatamine und Phosphazene, wobei auch Mischungen von mehreren Komponenten ausgewählt aus einer oder verschiedenen dieser Gruppen als Flammenschutzmittel zum Einsatz kommen können. Auch andere hier nicht speziell erwähnte Phosphorverbindungen können alleine oder in beliebiger Kombination mit anderen Phosphorverbindungen eingesetzt werden.

Bevorzugt werden halogenfreie Phosphorverbindungen eingesetzt.

Bevorzugte Mono- und oligomere Phosphor- bzw. Phosphonsäureester sind Phosphorverbindungen der allgemeinen Formel (IV)



worin

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , unabhängig voneinander jeweils gegebenenfalls halogeniertes  $C_1$ - bis  $C_8$ -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom, substituiertes  $C_5$ - bis  $C_6$ -Cycloalkyl,  $C_6$ - bis  $C_{20}$ -Aryl oder  $C_7$ - bis  $C_{12}$ -Aralkyl,

$n$  unabhängig voneinander, 0 oder 1

$q$  0 bis 30 und

X einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen, oder einen linearen oder verzweigten aliphatischen Rest mit 2 bis 30 C-Atomen, der OH-substituiert sein und bis zu 8 Etherbindungen enthalten kann, bedeuten.

5

Bevorzugt stehen  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  unabhängig voneinander für  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl, Phenyl, Naphthyl oder Phenyl- $C_1$ - $C_4$ -alkyl. Die aromatischen Gruppen  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  können ihrerseits mit Halogen- und/oder Alkylgruppen, vorzugsweise Chlor, Brom und/oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituiert sein. Besonders bevorzugte Aryl-Reste sind

10

Kresyl, Phenyl, Xylenyl, Propylphenyl oder Butylphenyl sowie die entsprechenden bromierten und chlorierten Derivate davon.

X in der Formel (IV) bedeutet bevorzugt einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen. Dieser leitet sich bevorzugt von

15

Diphenolen der Formel (I) ab.

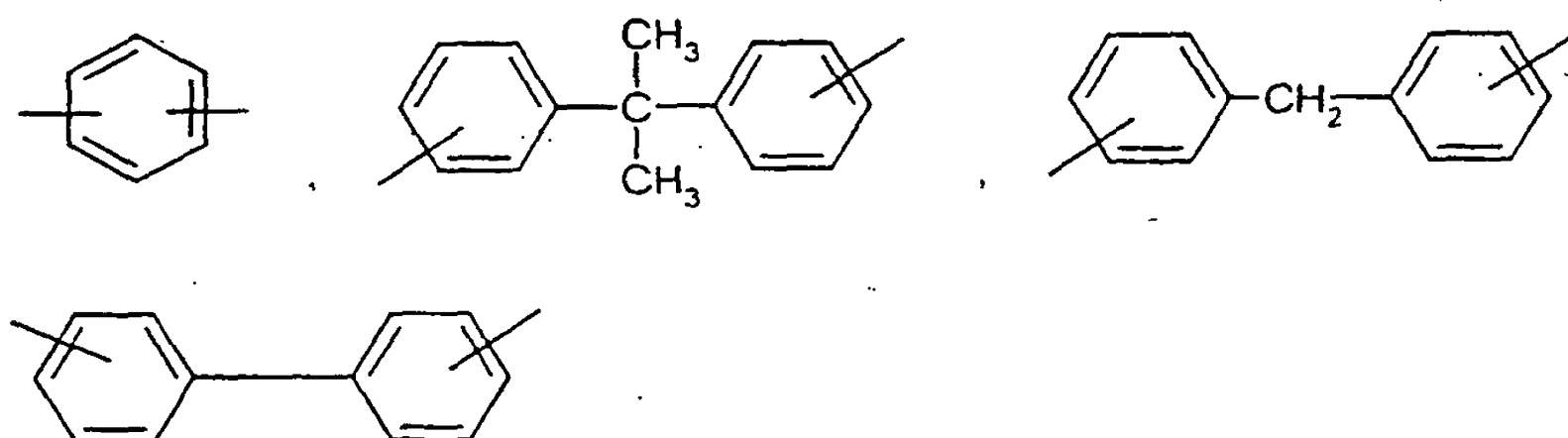
n in der Formel (IV) kann, unabhängig voneinander, 0 oder 1 sein, vorzugsweise ist n gleich 1.

20

q steht für Werte von 0 bis 30. Bei Einsatz von Mischungen verschiedener Komponenten der Formel (IV) können diese Mischungen vorzugsweise zahlen-gemittelte q-Werte von 0,3 bis 20, besonders bevorzugt von 0,5 bis 10, insbesondere von 0,5 bis 6 besitzen.

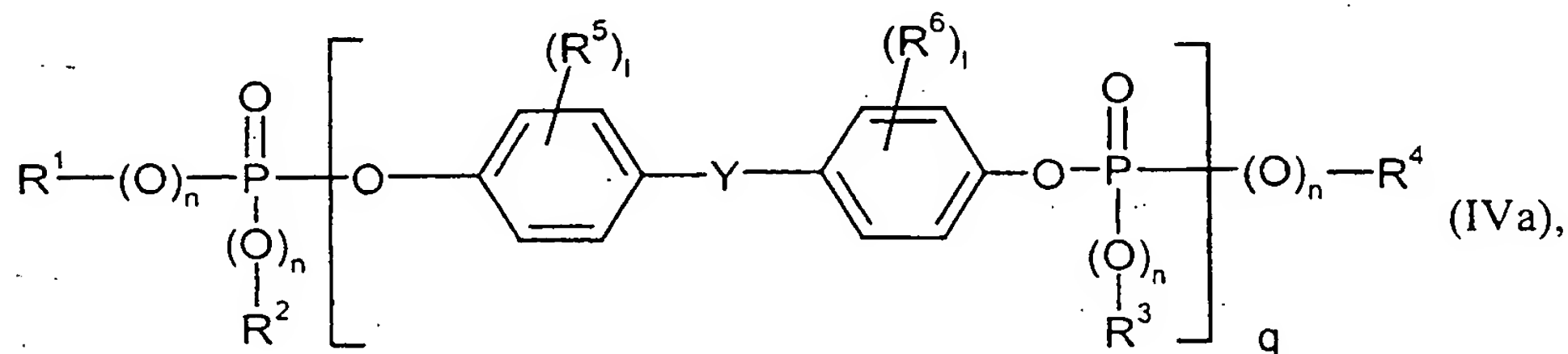
25

X steht besonders bevorzugt für



oder deren chlorierte oder bromierte Derivate, insbesondere leitet sich X von Resorcin, Hydrochinon, Bisphenol A oder 4,4'-Dihydroxydiphenyl ab. Besonders bevorzugt leitet sich X von Bisphenol A ab.

- 5 Als besonders vorteilhaft erweist sich der Einsatz von oligomeren Phosphorsäureestern der allgemeinen Formel (IVa)



10 worin

$\text{R}^1, \text{R}^2, \text{R}^3, \text{R}^4$  und  $n$  die oben angegebene Bedeutung haben,

15  $l$  unabhängig voneinander 0, 1, 2, 3 oder 4, vorzugsweise 0, 1 oder 2,

$q$  0,3 bis 20, bevorzugt 0,5 bis 10, insbesondere 0,5 bis 6,

$\text{R}^5$  und  $\text{R}^6$  unabhängig voneinander  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Alkyl, vorzugsweise Methyl und

20  $\text{Y}$   $\text{C}_1$ - $\text{C}_7$ -Alkyliden,  $\text{C}_1$ - $\text{C}_7$ -Alkylen,  $\text{C}_5$ - $\text{C}_{12}$ -Cycloalkylen,  $\text{C}_5$ - $\text{C}_{12}$ -Cycloalkyliden, -O-, -S-, -SO-,  $\text{SO}_2$  oder -CO-, vorzugsweise  $\text{C}_1$ - $\text{C}_7$ -Alkyliden, insbesondere Isopropyliden oder Methyl bedeuten.

25 Mit derartigen Phosphorverbindungen ausgerüstete Zusammensetzungen weisen eine besonders hohe Spannungsriss- und Hydrolysebeständigkeit sowie eine besonders geringe Neigung zur Belagsbildung bei der Spritzgussverarbeitung auf. Des weiteren

lässt sich mit diesen Flammenschutzmitteln eine besonders hohe Wärmeformbeständigkeit erzielen.

Besonders bevorzugt ist der Einsatz von solchen Verbindungen der allgemeinen Formel (IVa), die sich vom Bisphenol-A ableiten.

Als erfindungsgemäße Komponente C können Monophosphate ( $q=0$ ), Oligophosphate ( $q=1-30$ ) oder Mischungen aus Mono- und Oligophosphaten eingesetzt werden.

Monophosphorverbindungen der Formel (IV) sind insbesondere Tributylphosphat, Tris-(2-chlorethyl)-phosphat, Tris-(2,3-dibrompropyl)-phosphat, Triphenylphosphat, Trikresylphosphat, Diphenylkresylphosphat, Diphenyloctylphosphat, Diphenyl-2-ethylkresylphosphat, Tri-(isopropylphenyl)-phosphat, halogensubstituierte Arylphosphate, Methylphosphonsäuredimethylester, Methylphosphonsäurediphenylester, Phenylphosphonsäurediethylester, Triphenylphosphinoxid oder Trikresylphosphinoxid.

Die Phosphorverbindungen gemäß Komponente C. Formel (IV) sind bekannt (vgl. z.B. EP-A 363 608, EP-A 640 655) oder lassen sich nach bekannten Methoden in analoger Weise herstellen (z.B. Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie, Bd. 18, S. 301 ff. 1979; Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, Bd. 12/1, S. 43; Beilstein Bd. 6, S. 177).

Die mittleren  $q$ -Werte können bestimmt werden, indem mittels geeigneter Methode (Gaschromatographie (GC), High Pressure Liquid Chromatography (HPLC), Gelpermationschromatographie (GPC)) die Zusammensetzung der Phosphat-Mischung (Molekulargewichtsverteilung) bestimmt wird und daraus die Mittelwerte für  $q$  berechnet werden.

Phosphonatamine sind vorzugsweise Verbindungen der Formel (V)

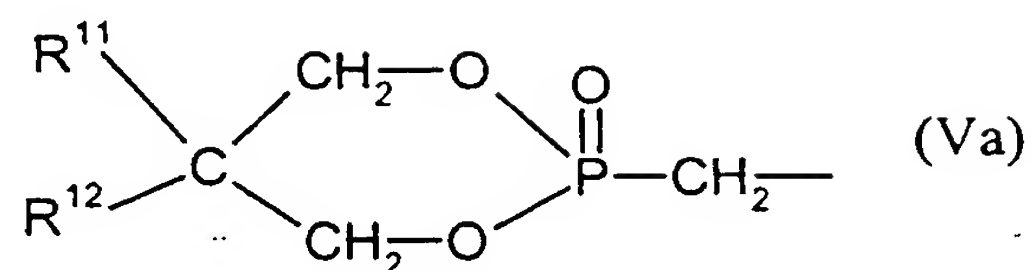
30



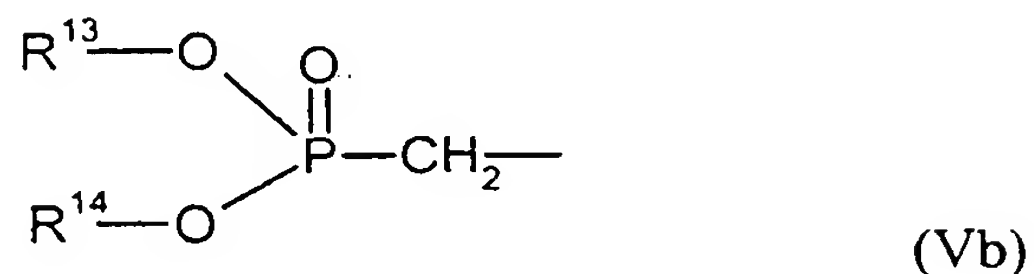
in welcher

A für einen Rest der Formel (Va)

5



oder (Vb)



10

steht,

$\text{R}^{11}$  und  $\text{R}^{12}$  unabhängig voneinander für unsubstituiertes oder substituiertes  $\text{C}_1\text{--C}_{10}$ -Alkyl oder für unsubstituiertes oder substituiertes  $\text{C}_6\text{--C}_{10}$ -Aryl, stehen,

15

$\text{R}^{13}$  und  $\text{R}^{14}$  unabhängig voneinander für unsubstituiertes oder substituiertes  $\text{C}_1\text{--C}_{10}$ -Alkyl oder unsubstituiertes oder substituiertes  $\text{C}_6\text{--C}_{10}$ -Aryl stehen oder

$\text{R}^{13}$  und  $\text{R}^{14}$  zusammen für unsubstituiertes oder substituiertes  $\text{C}_3\text{--C}_{10}$ -Alkylen stehen,

20

y die Zahlenwerte 0, 1 oder 2 bedeuten und

$\text{B}^1$  unabhängig für Wasserstoff, gegebenenfalls halogeniertes  $\text{C}_2\text{--C}_8$ -Alkyl, unsubstituiertes oder substituiertes  $\text{C}_6\text{--C}_{10}$ -Aryl steht.

25



B<sup>1</sup> steht vorzugsweise unabhängig für Wasserstoff, für Ethyl, n- oder iso-Propyl, welche durch Halogen substituiert sein können, unsubstituiertes oder durch C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl und/oder Halogen substituiertes C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl, insbesondere Phenyl oder Naphthyl.

5

Alkyl in R<sup>11</sup>, R<sup>12</sup>, R<sup>13</sup> und R<sup>14</sup> steht unabhängig vorzugsweise für Methyl, Ethyl, n-Propyl, iso-Propyl, n-, iso-, sec. oder tert. Butyl, Pentyl oder Hexyl.

10

Substituiertes Alkyl in R<sup>11</sup>, R<sup>12</sup>, R<sup>13</sup> und R<sup>14</sup> steht unabhängig vorzugsweise für durch Halogen substituiertes C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-Alkyl, insbesondere für ein- oder zweifach substituiertes Methyl, Ethyl, n-Propyl, iso-Propyl, n-, iso-, sec. oder tert.-Butyl, Pentyl oder Hexyl.

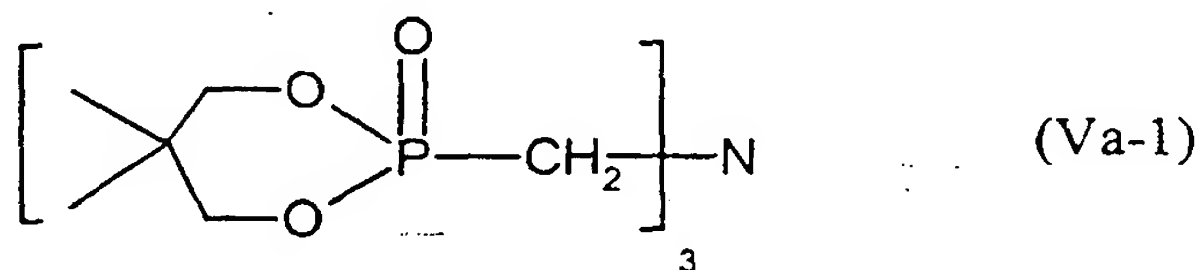
15

C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl steht in R<sup>11</sup>, R<sup>12</sup>, R<sup>13</sup> und R<sup>14</sup> unabhängig vorzugsweise für Phenyl, Naphthyl oder Binaphthyl, insbesondere o-Phenyl, o-Naphthyl, o-Binaphthyl, welche durch Halogen (im allgemeinen ein-, zwei- oder dreifach) substituiert sein können.

20

R<sup>13</sup> und R<sup>14</sup> können zusammen mit den Sauerstoffatomen, an die sie direkt gebunden sind, und dem Phosphoratom eine Ringstruktur bilden.

Beispielhaft und vorzugsweise werden genannt: 5,5,5',5',5'',5''-Hexamethyltris-(1,3,2-dioxaphosphorinan-methan)amino-2,2',2''-trioxid der Formel (Va-1)



25

(Versuchsprodukt XPM 1000 Fa. Solutia Inc., St. Louis, USA)

1,3,2-Dioxaphosphorinan-2-methanamin, N-butyl-N[(5,5-dimethyl-1,3,2-dioxaphosphorinan-2-yl)methyl]-5,5-dimethyl-, P,2-dioxide; 1,3,2-Dioxaphosphorinane-2-methanamin, N-[[5,5-dimethyl-1,3,2-dioxaphosphorinan-2-yl)methyl]-5,5-dimethyl-N-phenyl-, P,2-dioxid; 1,3,2-Dioxaphosphorinan-2-methanamin, N,N-dibutyl-5,5-di-

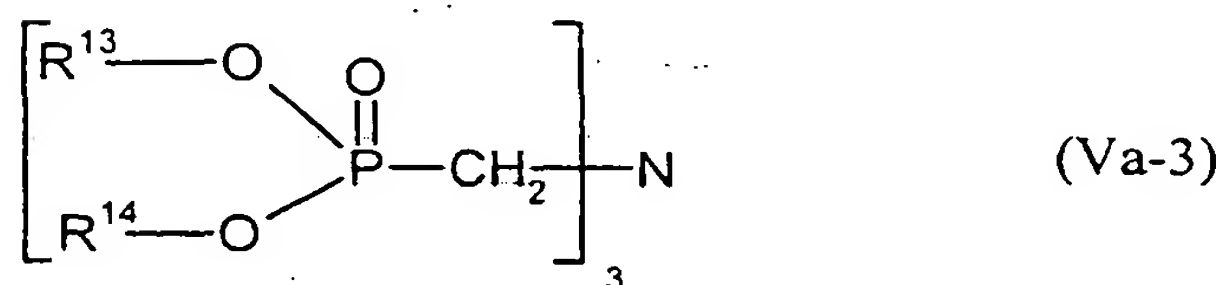
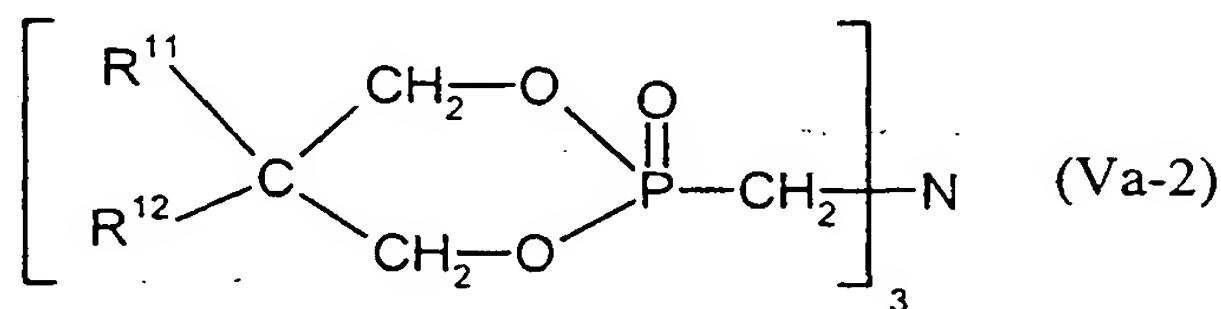
methyl-, 2-oxid, 1,3,2-Dioxaphosphorinan-2-methanimin, N-[(5,5-dimethyl-1,3,2-dioxaphosphorinan-2-yl)methyl]-N-ethyl-5,5-dimethyl-, P,2-dioxid, 1,3,2-Dioxaphosphorinan-2-methanamin, N-butyl-N-[(5,5-dichloromethyl-1,3,2-dioxaphosphorinan-2-yl)-methyl]-5,5-di-chloromethyl-, P,2-dioxid, 1,3,2-Dioxaphosphorinan-2-methanamin, N-[(5,5-di-chloromethyl-1,3,2-dioxaphosphorinan-2-yl)methyl]-5,5-di-chloromethyl-N-phenyl-, P,2-dioxid; 1,3,2-Dioxaphosphorinan-2-methanamin, N,N-di-(4-chlorobutyl)-5,5-dimethyl-2-oxide; 1,3,2-Dioxaphosphorinan-2-methanimin, N-[(5,5-dimethyl-1,3,2-dioxaphosphorinan-2-yl)methan]-N-(2-chloroethyl)-5,5-di(chloromethyl)-, P2-dioxid.

10

Bevorzugt sind weiterhin:

Verbindungen der Formel (Va-2) oder (Va-3)

15



20

wobei

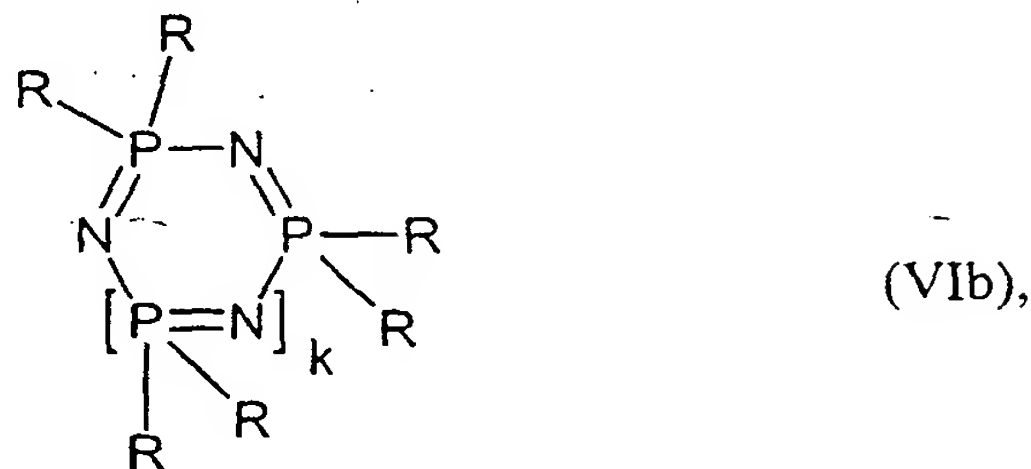
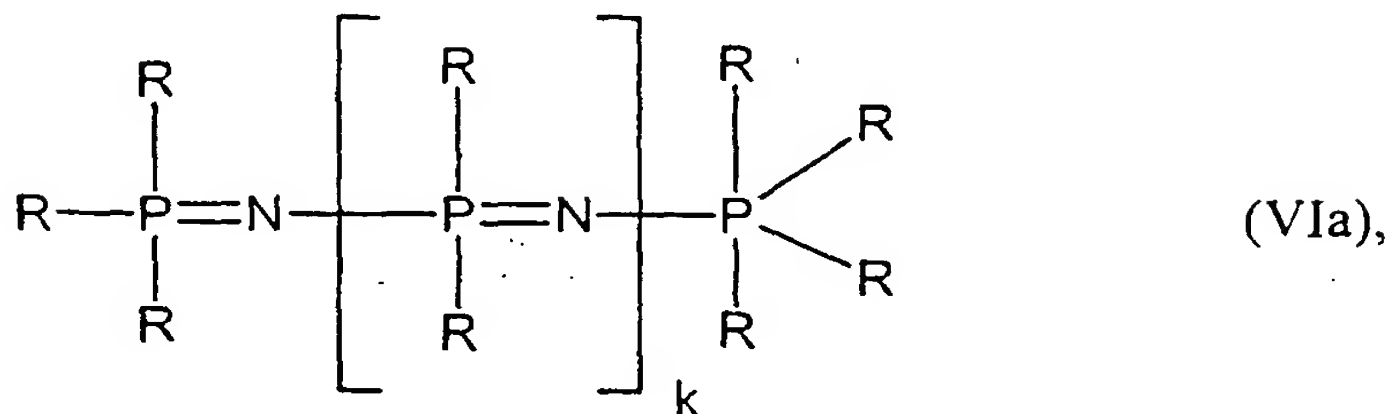
$R^{11}$ ,  $R^{12}$ ,  $R^{13}$  und  $R^{14}$  die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (Va-2) und (Va-1):

25

Die Herstellung der Phosphonatamine ist beispielsweise in US-Patentschrift 5,844,028 beschrieben.

Phosphazene sind Verbindungen der Formeln (VIa) und (VIb)



5

worin

- R jeweils gleich oder verschieden ist und für Amino, jeweils gegebenenfalls halogeniertes, vorzugsweise mit Fluor halogeniertes C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl, oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>- Alkoxy, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, substituiertes C<sub>5</sub>- bis C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl, vorzugsweise Phenyl oder Naphthyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryloxy, vorzugsweise Phenoxy, Naphthyloxy, oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl, vorzugsweise Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, steht,
- k für 0 oder eine Zahl von 1 bis 15, vorzugsweise für eine Zahl von 1 bis 10 steht.

15

Beispielhaft seien genannt:

20

Propoxyphosphazen, Phenoxyphosphazen, Methylphenoxyphosphazen, Aminophosphazen und Fluoralkylphosphazene.

Bevorzugt ist Phenoxyphosphazen.

Die Phosphazene können allein oder als Mischung mit anderen phosphorhaltigen Flammenschutzmitteln eingesetzt werden. Der Rest R kann immer gleich sein oder 2  
5 oder mehr Reste in den Formeln (VIa) und (VIb) können verschieden sein.

Phosphazene und deren Herstellung sind beispielsweise in EP-A 728 811, DE-A 1 961 668 und WO 97/40092 beschrieben.

10 Die Flammenschutzmittel können allein oder in beliebiger Mischung untereinander oder in Mischung mit anderen Flammenschutzmitteln eingesetzt werden.

#### **Komponente D**

15 Unter Talk wird ein natürlich vorkommender oder synthetisch hergestellter Talk verstanden.

Reiner Talk hat die chemische Zusammensetzung  $3 \text{MgO} \cdot 4 \text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$  und somit einen MgO-Gehalt von 31,9 Gew.-%, einen  $\text{SiO}_2$ -Gehalt von 63,4 Gew.-% und einen  
20 Gehalt an chemisch gebundenem Wasser von 4,8 Gew.-%. Es handelt sich um ein Silikat mit Schichtstruktur.

Natürlich vorkommende Talkmaterialien besitzen im allgemeinen nicht die oben aufgeführte Idealzusammensetzung, da sie durch partiellen Austausch des Magnesiums durch andere Elemente, durch partiellen Austausch von Silizium, durch z.B.  
25 Aluminium und/oder durch Verwachsungen mit anderen Mineralien wie z.B. Dolomit, Magnesit und Chlorit verunreinigt sind.

Die speziellen Talksorten im erfindungsgemäßen Sinne zeichnen sich aus durch eine  
30 besonders hohe Reinheit, gekennzeichnet durch einen MgO-Gehalt von 28 bis 35 Gew.-%, bevorzugt 30 bis 33 Gew.-%, besonders bevorzugt 30,5 bis 32 Gew.-%

und einen  $\text{SiO}_2$ -Gehalt von 55 bis 65 Gew.-%, bevorzugt 58 bis 64 Gew.-%, besonders bevorzugt 60 bis 62,5 Gew.-%. Bevorzugte Talktypen zeichnen sich des Weiteren durch einen  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Gehalt von kleiner als 5 Gew.-%, besonders bevorzugt kleiner als 1 Gew.-%, insbesondere kleiner als 0,7 Gew.-%, aus.

5

Kommerziell verfügbare Talktypen, die dieser Definition entsprechen, sind z.B. Naintsch A3, A7, A10, A30 und Naintsch Prever M30 der Firma Naintsch Mineralwerke GmbH (Graz, Österreich) sowie die Typen Finntalc MO5SL, MO3 und M20SL, die durch die Firma Omya GmbH (Köln) vertrieben werden.

10

Talktypen im nicht erfindungsgemäßen Sinne sind z.B. Naintsch SE-Standard, Naintsch SE-Super, Naintsch SE-Micro sowie Naintsch ST 10, 15, 20, 30 und 60, die allesamt von der Firma Naintsch Mineralwerke GmbH vertrieben werden.

15

Vorteilhaft ist insbesondere der Einsatz des erfindungsgemäßen Talkes in Form von feinvermahlenden Typen mit einer mittleren größten Teilchengröße  $d_{50}$  von  $<20 \mu\text{m}$ , bevorzugt  $<10 \mu\text{m}$ , besonders bevorzugt  $<5 \mu\text{m}$ , ganz besonders bevorzugt  $\leq 2,5 \mu\text{m}$ . Durch Einsatz solch feiner Talktypen wird insbesondere eine verbesserte (Kerb-)Schlagzähigkeit erzielt, ohne dass die übrigen Eigenschaften (Flammwidrigkeit, Steifigkeit, Fließverhalten, Spannungsrissbeständigkeit, etc.) darunter leiden.

20

Der Talk kann oberflächenbehandelt, z.B. silanisiert sein, um eine bessere Verträglichkeit mit dem Polymer zu gewährleisten. Im Hinblick auf die Verarbeitung und Herstellung der Formmassen ist auch der Einsatz kompaktierter Talks vorteilhaft.

25

### Weitere Zusatzstoffe E

Als Antitropfmittel können die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen vorzugsweise fluorierte Polyolefine E.1 bis zu 3 Gew.-Teilen, vorzugsweise 0,01 bis 1 Gew.-

30

Teil, bezogen auf die gesamte Zusammensetzung enthalten.

Fluorierte Polyolefine sind allgemein bekannt (vgl. z.B. EP-A 640 655). Ein handelsübliches Produkt ist beispielsweise Teflon® 30 N von der Firma DuPont.

Die fluorierten Polyolefine können auch in Form einer koagulierten Mischung von  
5 Emulsionen der fluorierten Polyolefine mit Emulsionen der Pffropfpolymerisate B) oder einer Emulsion eines Copolymerisats vorzugsweise auf Styrol/Acrylnitril-Basis eingesetzt werden, wobei das fluorierte Polyolefin als Emulsion mit einer Emulsion des Pffropfpolymerisats bzw. Copolymerisats gemischt und anschließend koaguliert wird.

10

Weiterhin können die fluorierten Polyolefine als Präcompound mit dem Pffropfpolymerisat B oder einem Copolymerisat auf vorzugsweise Styrol/Acrylnitril-Basis eingesetzt werden. Die fluorierten Polyolefine werden als Pulver mit einem Pulver oder Granulat des Pffropfpolymerisats bzw. Copolymerisats vermischt und in der  
15 Schmelze im allgemeinen bei Temperaturen von 208 bis 330°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern oder Doppelwellenschnecken compoundiert.

Die fluorierten Polyolefine können auch in Form eines Masterbatches eingesetzt werden, welcher durch Emulsionspolymerisation mindestens eines monoethylenisch  
20 ungesättigten Monomers in Gegenwart einer wässrigen Dispersion des fluorierten Polyolefins hergestellt wird. Bevorzugte Monomerkomponenten sind Styrol, Acrylnitril und Mischungen daraus. Das Polymerisat wird nach saurer Fällung und nachfolgender Trocknung als rieselfähiges Pulver eingesetzt.

25 Die Koagulate, Präcompounds bzw. Masterbatches besitzen üblicherweise Feststoffgehalte an fluoriertem Polyolefin von 5 - 95 Gew.-%, vorzugsweise 7 bis 60 Gew.-%.

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen können auch weitere Polymere enthalten.

30



Geeignet sind bevorzugt Vinyl(co)Polymerisate (E.2) von mindestens einem Monomeren aus der Gruppe der Vinylaromaten, Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile), (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester, ungesättigte Carbonsäuren sowie Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren. Insbesondere geeignet sind  
5 (Co)Polymerisate aus

E.2.1 50 bis 99, vorzugsweise 60 bis 90 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten wie beispielsweise Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder Methacrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester wie  
10 z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat), und

E.2.2 1 bis 50, vorzugsweise 10 bis 40 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile) wie Acrylnitril und Methacrylnitril und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat)  
15 und/oder ungesättigte Carbonsäuren (wie Maleinsäure) und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

Die (Co)Polymerisate E.2 sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei.  
20

Besonders bevorzugt ist das Copolymerisat aus E.2.1 Styrol und E.2.2 Acrylnitril.

Die (Co)Polymerisate gemäß E.2 sind bekannt und lassen sich durch radikalische Polymerisation, insbesondere durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massopolymerisation herstellen. Die (Co)Polymerisate gemäß Komponente E.2 besitzen  
25 vorzugsweise Molekulargewichte  $M_w$  (Gewichtsmittel, ermittelt durch Lichtstreuung oder Sedimentation) zwischen 15 000 und 200 000.

Geeignet sind weiterhin Polyalkylenterephthalate (E.3) wie sie in EP-A-841 187  
30 beschrieben sind.

Bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die aus Terephthalsäure und/oder deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylenterephthalate.

5

Vorzugsweise enthalten die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen Vinyl(co)polymerisate, Polyalkylenterephthalate oder Mischungen hieraus bis zu einer Menge von 30, vorzugsweise bis 15 Gew.-%, bezogen auf die Gesamt-Zusammensetzung.

10

Die erfindungsgemäßen Formmassen können wenigstens ein weiteres der üblichen Additive, wie z.B. Antitropfmittel, Gleit- und Entformungsmittel, Nukleiermittel, Antistatika, Stabilisatoren, Farbstoffe und Pigmente sowie von Talk verschiedene Füll- und Verstärkungsstoffe enthalten.

15

Die erfindungsgemäßen Formmassen enthaltend die obengenannten Komponenten und gegebenenfalls Zusätze, werden hergestellt, indem man die jeweiligen Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei Temperaturen von 200°C bis 300°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert oder schmelzextrudiert.

20

Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur) als auch bei höherer Temperatur.

25

Die erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen eignen sich aufgrund ihrer ausgezeichneten Flammwidrigkeit sowie ihrer guten weiteren Eigenschaften wie z.B. ESC-Verhalten (Spannungsrißbeständigkeit), Steifigkeit, Wärmeformbeständigkeit, Fließfähigkeit und Verzugsarmut zur Herstellung von Formkörpern jeglicher Art, insbesondere von dünnwandigen Teilen mit erhöhten Anforderungen an die Flammwidrigkeit.

30

Die Formkörper können z.B. durch Spritzguss oder Extrusion hergestellt werden. Beispiele für herstellbare Formkörper sind: Gehäuseteile jeder Art, z.B. für Haushaltsgeräte wie Saftpressen, Kaffeemaschinen, Mixer; für Büromaschinen, wie Monitore, (tragbare) Computer, Drucker und Kopierer. Weitere mögliche Einsatzgebiete sind Abdeckplatten und Elektroinstallationskanäle für den Bausektor sowie  
5 Teile für den Kfz-Sektor. Die Formmassen sind außerdem auf dem Gebiet der Elektrotechnik z.B. für Schalter, Steckdosen und Platinen einsetzbar.

Gegenstand der Erfindung sind ebenfalls Verfahren zur Herstellung der Zusammensetzung, Verwendung der Zusammensetzung zur Herstellung von Formkörpern sowie  
10 die Formkörper selbst.

**Beispiele****Komponente A-1**

- 5 Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,28, gemessen in Methylenchlorid bei 25°C und in einer Konzentration von 0,5 g/100 ml.

**Komponente A-2**

- 10 Wie Komponente A-1, jedoch mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,20.

**Komponente A-3**

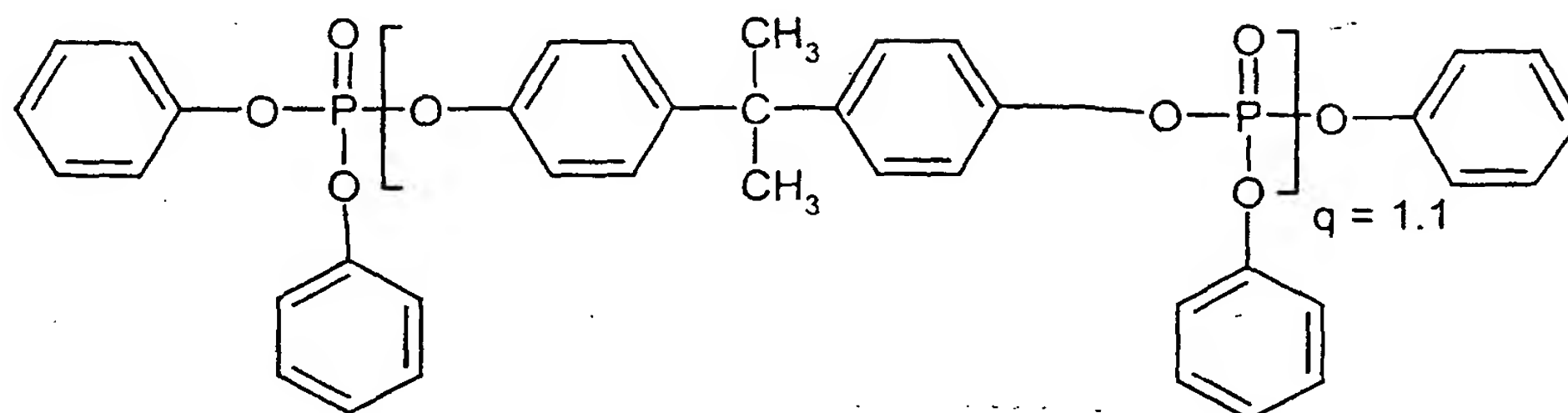
- 15 Wie Komponente A-1, jedoch mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,25.

**Komponente B-1**

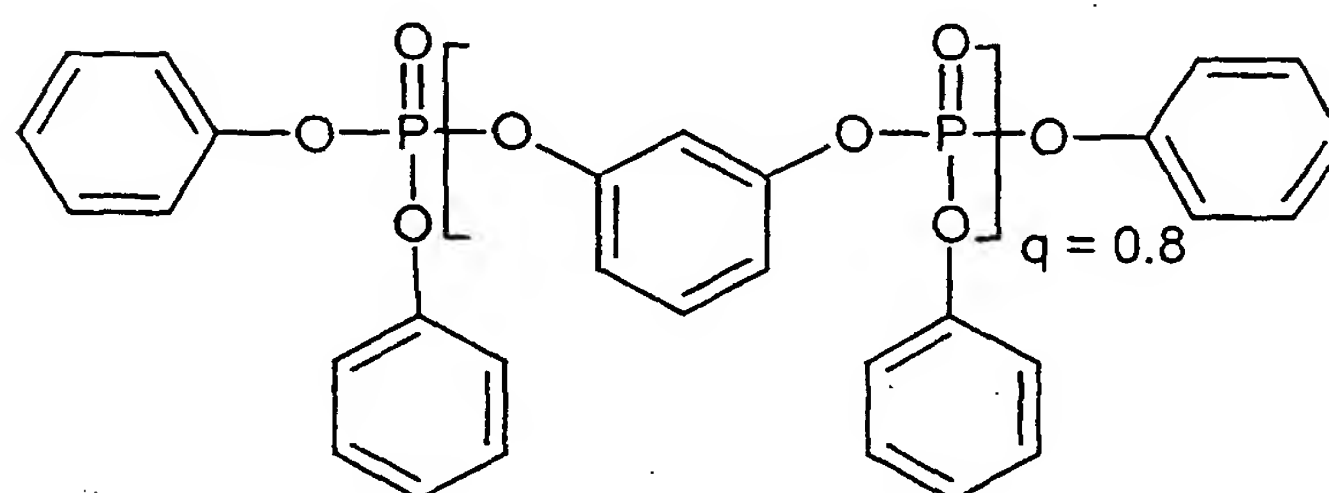
- 20 Pfropfpolymerisat, hergestellt durch Emulsionspolymerisation, von 45 Gew.-Teilen Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 72:28 auf 55 Gew.-Teilen eines teilchenförmigen vernetzten Polybutadienkautschuks (mittlerer Teilchendurchmesser  $d_{50} = 0,3$  bis  $0,4 \mu\text{m}$ ).

**Komponente B-2**

- 25 Pfropfpolymerisat aus 83 Gew.-Teilen eines Copolymerisats aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 75,5 auf 24,5 Gew.-Teile vernetzten Polybutadienstyrol-Kautschuk mit 10 % Styrol-Anteil, hergestellt durch Massepolymerisation. (mittlerer Teilchendurchmesser  $d_{50} = 0,5 \mu\text{m}$ ).

**Komponente C****C.1 Bisphenol-A-basierendes Phosphat**

5

**C.2 Resorcinol-basierendes Phosphat**

10 Zur Bestimmung des mittleren q-Wertes wurden zuerst die Anteile der oligomeren Phosphate durch HPLC-Messungen bestimmt:

Säulentyp:	LiChrosorp RP-8
Elutionsmittel im Gradienten:	Acetonitril/Wasser 50:50 bis 100:0
Konzentration:	5 mg/ml

15 Aus den Anteilen der einzelnen Komponenten (Mono- und Oligophosphate) wurden dann nach bekannten Verfahren die zahlengewichteten Mittelwerte berechnet.

**Komponente D**

- 5 D1: Naintsch Prever M30, Talk der Firma Naintsch Mineralwerke GmbH (Graz, Österreich) mit einem MgO-Gehalt von 31,2 Gew.-%, einem SiO<sub>2</sub>-Gehalt von 62,5 Gew.-% und einem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Gehalt von 0,7 Gew.-%.
- 10 D2: Finntalc M05SL, Talk der Firma Mondo Minerals Oy (Helsinki, Finnland), vertrieben durch die Firma Omya GmbH (Köln) mit einem MgO-Gehalt von 31 Gew.-%, einem SiO<sub>2</sub>-Gehalt von 61 Gew.-%, und einem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Gehalt von 0,3 Gew.-%.
- 15 D3: Finntalc M20SL, Talk der Firma Mondo Minerals Oy mit einem MgO-Gehalt von 31 Gew.-%, einem SiO<sub>2</sub>-Gehalt von 61 Gew.-% und einem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Gehalt von 0,3 Gew.-%.
- D4: Naintsch A3, Talk der Firma Naintsch Mineralwerke GmbH mit einem MgO-Gehalt von 31,5 Gew.-%, einem SiO<sub>2</sub>-Gehalt von 62,0 Gew.-% und einem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Gehalt von 0,4 Gew.-%.
- 20 D5: Naintsch SE-Super, Talk der Firma Naintsch Mineralwerke GmbH mit einem MgO-Gehalt von 22 Gew.-% und einem SiO<sub>2</sub>-Gehalt von 17 Gew.-%. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> wurde nicht nachgewiesen.
- 25 D6: Naintsch ST10, Talk der Firma Naintsch Mineralwerke GmbH mit einem MgO-Gehalt von 30 Gew.-%, einem SiO<sub>2</sub>-Gehalt von 48 Gew.-% und einem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Gehalt von 10,5 Gew.-%.

30 Bei den angegebenen chemischen Zusammensetzungen handelt es sich um Herstellerangaben. Die Analytik erfolgt nach literaturbekannten Methoden (z.B. durch Röntgenfluoreszenzspektroskopie oder Atomadsorptionsspektroskopie oder Kalorimetrie).



### Komponente E-1

Die Polytetrafluorethylen-Emulsion wird hergestellt durch Cofällung einer Mischung wässriger Emulsionen des Pfropfpolymerisats (Komponente B) und eines Tetrafluor-  
5 ethylenpolymerisats. Das Gewichtsverhältnis Pfropfpolymerisat B zum Tetrafluor-  
ethylenpolymerisat E im Koagulat ist 90 Gew.-% zu 10 Gew.-%. Die Tetrafluor-  
ethylenpolymerisat-Emulsion besitzt einen Feststoffgehalt von 60 Gew.-%, der  
mittlere PTFE-Teilchendurchmesser liegt zwischen 0,05 und 0,5 µm. Die Pfropfpoly-  
10 merisat-Emulsion besitzt einen Feststoffgehalt von 34 Gew.-% und einen mittleren  
Latexteilchendurchmesser von 0,3 bis 0,4 µm.

### Herstellung von E-1

15 Die Emulsion des Tetrafluorethylenpolymerisats (Teflon 30 N der Fa. DuPont) wird  
mit der Emulsion des Pfropfpolymerisats B vermischt und mit 1,8 Gew.-%, bezogen  
auf Polymerfeststoff, phenolischer Antioxidantien stabilisiert. Bei 85 bis 95°C wird  
die Mischung mit einer wässrigen Lösung von  $\text{MgSO}_4$  (Bittersalz) und Essigsäure  
bei pH 4 bis 5 koagulierte, filtriert und bis zur praktischen Elektrolytfreiheit  
20 gewaschen, anschließend durch Zentrifugation von der Hauptmenge Wasser befreit  
und danach bei 100°C zu einem Pulver getrocknet. Dieses Pulver kann dann mit den  
weiteren Komponenten in den beschriebenen Aggregaten compoundiert werden.

### Komponente E-2

25

Blendex 449: PTFE-Präparat der Firma General Electric Plastics aus 50 Gew.-%  
PTFE und 50 Gew.-% SAN-Copolymer.

**Komponente E-3**

Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat mit einem Styrol/Acrylnitril-Verhältnis von 72:28 und einer Grenzviskosität von 0,55 dl/g (Messung in Dimethylformamid bei 20°C).

5

**Komponente E-4**

Phosphitstabilisator

10

**Komponente E-5**

Pentaerythritetrastearat als Entformungsmittel

**Herstellung und Prüfung der erfindungsgemäßen Formmassen**

15

Das Mischen der Komponenten A bis E erfolgt auf einem 3 l-Innenkneteter. Die Formkörper werden auf einer Spritzgießmaschine Typ Arburg 270E bei 240°C hergestellt.

20

Das Spannungsrißverhalten wird an Stäben der Abmessung 80 x 10 x 4 mm untersucht. Als Testmedium wird eine Mischung aus 60 Vol.-% Toluol und 40 Vol.-% Isopropanol verwendet. Die Probekörper werden mittels einer Kreisbogenschablone vorgedehnt (Vordehnung 1,2 bis 2,4 %) und bei Zimmertemperatur 5 Minuten im Testmedium gelagert.

25

Das Spannungsrißverhalten wird über die Randfaserdehnung beurteilt, die mindestens erforderlich ist, damit der Stab innerhalb der 5-minütigen Expositionszeit im Testmedium bricht.

30

Die Flammwidrigkeit wird gemäß UL94V bestimmt an Stäben mit einer Dicke von 1,2 mm.

Der Zugmodul wird gemäß ISO 527/DIN 53 457 gemessen.

Tabelle I

Zusammensetzung und Eigenschaften

Beispiel/ Komponenten	1	2	3	4	5	V1*	V2*
A1	32,3	32,3	32,3	32,3	32,3	32,3	32,3
A2	32,3	32,3	32,3	32,3	32,3	32,3	32,3
A3							
B1	8,6	8,6	5,0	5,0	5,0	5,0	5,0
C1							
C2	10,9	10,9	10,9	10,9	10,9	10,9	10,9
D1	10,0						
D2		10,0	10,0				
D3				10,0			
D4					10,0		
D5						10,0	
D6							10,0
E1			4,0	4,0	4,0	4,0	4,0
E2	0,8	0,8					
E3	4,6	4,6	5,0	5,0	5,0	5,0	5,0
E4	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
E5	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
Eigenschaften:							
E-Modul	4,0	4,0	4,0	3,9	4,0	3,1	3,5
ESC	2,4	2,2	2,2	>2,4	2,0	2,0	2,4
UL94 V bei 1,2 mm	V0	V0	V0	V0	V0	V2	V1
	(19 s)	(11 s)	(35 s)	(8 s)	(13 s)	(81 s)	(61 s)

\* Vergleichsversuch

Fortsetzung der Tabelle 1

Beispiel/ Komponenten	6	7	8	9	10	11	12	V3*	13	V4*	14	15
A1	34,8	35,8	36,8	27,3	31,6	26,7			32,8	33,1	31,3	30,3
A2	34,8	35,8	36,8	27,3	31,6	26,7			32,8	33,1	31,3	30,3
A3							64,9	67,0				
B1	5,0	5,0	5,0	8,6	4,9	4,9	6,5	6,7	7,1	7,2		2,0
B2											19,9	19,9
C1					12,8	12,8	14,0	14,4	15,1	15,3	14,0	14,0
C2	10,9	10,9	10,9	10,9								
D1												
D2	5,0	3,0	1,0	20,0	9,8	19,6	3,0		1,0			
D3											2,0	2,0
D4												
D5												
D6												
E1	4,0	4,0	4,0		3,9	3,9	4,6	4,7	4,6	4,7		
E2				0,8							1,0	1,0
E3	5,0	5,0	5,0	4,6	4,9	4,9	6,5	6,7	6,1	6,1		
E4	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
E5	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
Eigenschaften:												
E-Modul ESC	3,4 2,2	3,1 2,2	2,8 1,8	5,5 2,4	3,9 2,4	5,4 1,8	2,9 >2,4	2,6 2,2	2,8 2,4	2,5 2,0	n.g. 2,2	n.g. 2,2
UL94 V bei 1,2 mm	V0 (19 s)	V0 (27 s)	V0 (43 s)	V0 (36 s)	V0 (27 s)	V0 (30 s)	V0 (23 s)	V2 (56 s)	V0 (42 s)	V2 (68 s)	V0 (17 s)	V0 (44 s)

n.g. = nicht gebrochen

Aus Tabelle 1 geht hervor, dass durch Einsatz hochreiner Talktypen (Beispiele 1-5) eine verbesserte Flammwidrigkeit bei 1,2 mm Wandstärke (verringerte Nachbrennzeiten als auch verringerte Neigung zum Abtropfen), sowie ein höherer E-Modul erzielt wird als bei Einsatz sonstiger Talktypen in gleicher Konzentration (Vergleich 1 und 2). Nur mit hochreinem Talk wird bei 1,2 mm Wandstärke eine V-0-Bewertung im UL94V-Test erzielt. Die Formmassen zeichnen sich des Weiteren durch eine ungewöhnlich gute Spannungsrißbeständigkeit aus. Die Natur des eingesetzten PTFE-Präparats hat dabei einen nur unwesentlichen Einfluß auf diese Eigenschaften (Beispiel 2 und 3). Der Effekt wird mit verschiedenen phosphorhaltigen Flamm-  
schutzmitteln gefunden.

Mit zunehmender Talkkonzentration werden innerhalb gewisser Grenzen, die von der jeweiligen Zusammensetzung und der Art des Flammenschutzmittels abhängen, die Nachbrennzeiten zunächst zunehmend reduziert (Beispiele 3 und 6-8). Der E-Modul steigt linear mit dem Talkgehalt an, wobei bei hochreinen Talktypen ein E-Modulanstieg von bis zu 0,15 GPa je 1 Gew.-% Talkzusatz erzielt wird, während bei Einsatz sonstiger Talktypen deutlich geringere E-Modulerhöhungen (Vergleich 1 und 2) beobachtet werden.

Bereits bei sehr niedrigen Talkgehalten von z.B. 1 Gew.-% kann in Kombination mit verschiedenen phosphorhaltigen Flammenschutzmitteln eine V-0-Bewertung im UL94V-Test bei 1,2 mm Wandstärke und eine deutliche Verbesserung des ESC-Verhaltens realisiert werden (Beispiele 7, 8, 12 und 13). Ein Vergleich von Beispiel 12 mit Vergleich 3 oder von Beispiel 13 mit Vergleich 4 beweist den positiven Einfluß des Talks auf die Flammwidrigkeit (Nachbrennzeit und Abtropfneigung) sowie die auf Spannungsrißbeständigkeit und Steifigkeit der Formmasse. Durch Einsatz kleiner Talkkonzentrationen, z.B. 1-5 Gew.-%, lassen sich Formmassen mit exzellenter Flammwidrigkeit und einem ausgewogenem Verhältnis aus erhöhter Steifigkeit und hoher Zähigkeit sowie sehr gutem ESC-Verhalten herstellen.

30

Eine V-0-Bewertung im UL94V-Test bei 1,2 mm Wandstärke resultiert in Kombination mit verschiedenen phosphorhaltigen Flammenschutzmitteln auch bei hohen Talkgehalten von z.B. 10-20 Gew.-% (z. B. Beispiele 9 und 11). Diese hoch-talk-gefüllten Formmassen zeichnen sich durch ihre exzellente Flammwidrigkeit und besonders hohe Steifigkeit bei gleichzeitig überraschend guter Zähigkeit aus.

Bei Verwendung von C.1 (Bisphenol A-basierendes Phosphat) als Phosphor-haltiges Flammenschutzmittel resultiert im Vergleich zum Resorcinol-basierenden Phosphat (C.2) insbesondere bei kleinen Talkgehalten von z.B. kleiner oder gleich 3 Gew.-% ein besonders gutes ESC-Verhalten (Beispiele 7 und 8 bzw. 12 und 13). Jedoch wird auch beim Resorcinol-basierenden Phosphat (C.2) durch Zusatz von Talk eine Verbesserung des ESC-Verhaltens erzielt (Beispiele 7 und 8).

Der beschriebene positive Effekt des speziellen Talks auf die Flammwidrigkeit wird sowohl bei Einsatz nur eines Polycarbonats als auch bei Einsatz einer Mischung mehrerer Polycarbonate unterschiedlicher Lösungsviskosität beobachtet (Beispiele 7, 8, 12 und 13).

Der Effekt wird auch bei Einsatz von Masse-ABS (Beispiel 14) oder aber von Mischungen aus Masse- und Emulsions-ABS (Beispiel 15) als Schlagzähmodifikator beobachtet.

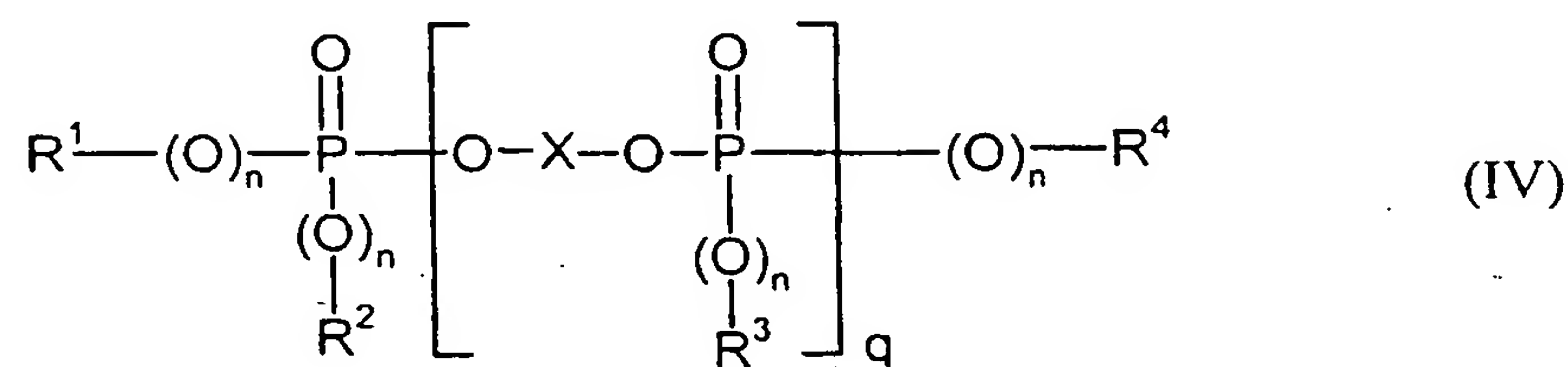
Patentansprüche

1. Zusammensetzungen enthaltend Polycarbonat, mindestens ein Schlagzäh-  
modifikator, mindestens ein phosphorhaltiges Flammschutzmittel und einen  
5 Talk hoher Reinheit, gekennzeichnet durch einen MgO-Gehalt von 28 bis  
35 Gew.-%, einen SiO<sub>2</sub>-Gehalt von 55 bis 65 Gew.-% und einen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-  
Gehalt < 5 Gew.-%, jeweils bezogen auf den Talk.
2. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 enthaltend 40 bis 98 Gew.-% min-  
destens eines aromatischen Polycarbonats, 0,5 bis 50 Gew.-% mindestens  
10 eines Pfropfpolymerisats, 0,5 bis 40 Gew.-% mindestens eines Phosphor-  
haltigen Flammschutzmittels und 0,05 bis 40 Gew.-% Talk.
3. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 enthaltend 45 bis 95 Gew.-% min-  
destens eines aromatischen Polycarbonats, 1 bis 35 Gew.-% mindestens eines  
15 Pfropfpolymerisats, 2 bis 20 Gew.-% mindestens eines Phosphor-haltigen  
Flammschutzmittels und 0,5 bis 30 Gew.-% Talk.
4. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 3 enthaltend einen Talk, gekenn-  
zeichnet durch einen MgO-Gehalt von 30-33 Gew.-%, einen SiO<sub>2</sub>-Gehalt von  
20 58 bis 64 Gew.-% und einen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Gehalt < 1,0 Gew.-%, jeweils bezogen auf  
den Talk.
5. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 3 enthaltend einen Talk, gekenn-  
zeichnet durch einen MgO-Gehalt von 30,5 bis 32 Gew.-%, einen SiO<sub>2</sub>-Ge-  
25 halt von 60 bis 62,5 Gew.-% und einen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Gehalt < 0,7 Gew.-%, jeweils  
bezogen auf den Talk.
6. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 5, wobei der Talk zusätzlich  
30 dadurch gekennzeichnet ist, dass die Talkpartikel mit einem größten Durch-



messer von 2,5 µm oder kleiner einen Gew.-Anteil von mindestens 50 % des Talks ausmachen ( $d_{50}$  kleiner oder gleich 2,5 µm).

7. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 6 enthaltend als Schlagzäh-  
5 modifikator ein oder mehrere Pfropfpolymerisate von 5 bis 95 Gew.-%  
wenigstens eines Vinylmonomeren auf 95 bis 5 Gew.-% mindestens einer  
Pfropfgrundlage mit einer Glastemperatur  $< 10^{\circ}\text{C}$ .
8. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 7 mit Pfropfpolymerisaten auf der  
10 Grundlage von Dien-, EP(D)M-, Acrylat- oder Silikonkautschuken.
9. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 7 enthaltend ein Emulsions- oder  
Masse-ABS oder Mischungen daraus als Schlagzähmodifikator.
- 15 10. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 9 enthaltend mindestens ein  
Phosphor-haltiges Flammenschutzmittel ausgewählt aus den Gruppen der  
Mono- und Oligo-Phosphorsäure- oder Phosphonsäureester, Phosphonat-  
amine und Phosphazene.
- 20 11. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 10 enthaltend als Flammschutz-  
mittel mindestens eine Phosphorverbindung der allgemeinen Formel (IV)



25

worin

$\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  jeweils unabhängig voneinander gegebenenfalls halogeniertes  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_8$ -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder

Halogen substituiertes C<sub>5</sub>- bis C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl,

n unabhängig voneinander 0 oder 1,

5

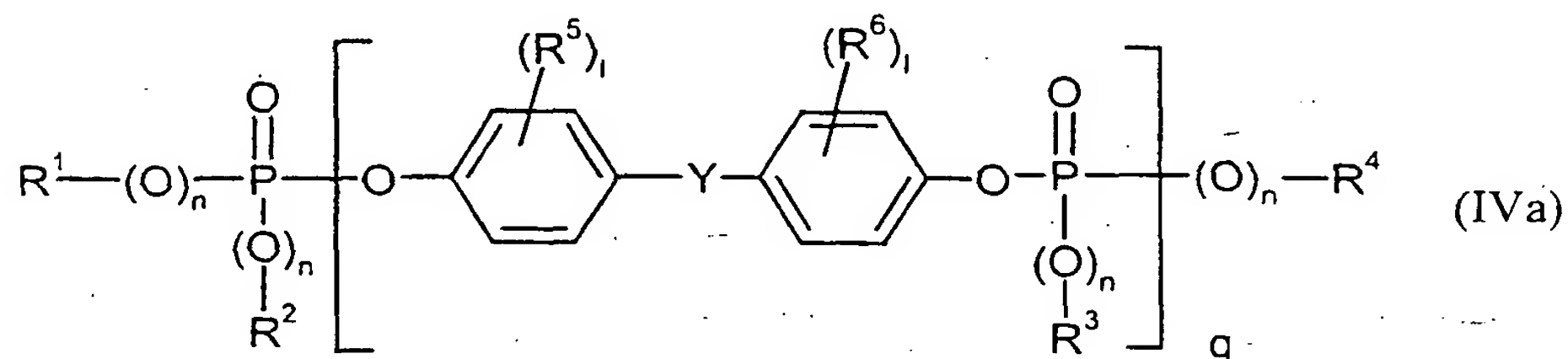
q 0 bis 30 und

X einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen, oder einen linearen oder verzweigten aliphatischen Rest mit 2 bis 30 C-Atomen, der OH-substituiert sein und bis zu 8 Etherbindungen enthalten kann, bedeuten.

10

12. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 11 enthaltend als Flammschutzmittel mindestens eine Verbindung der Formel

15



worin

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> jeweils unabhängig voneinander C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl und/oder gegebenenfalls durch Alkyl substituiertes C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl oder C<sub>7</sub>-C<sub>12</sub>-Aralkyl,

20

n unabhängig voneinander 0 oder 1,

25

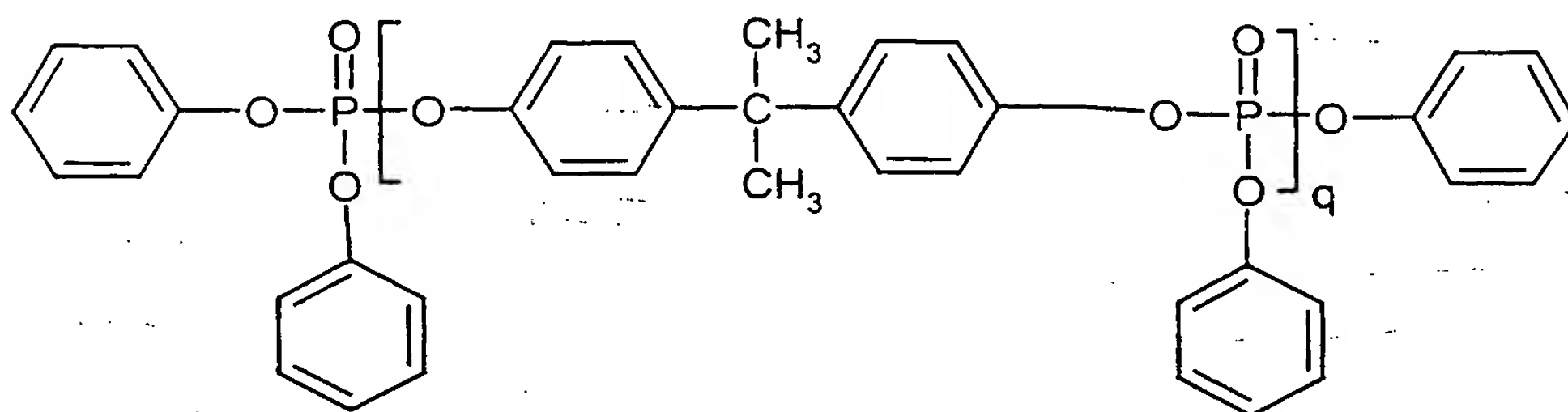
l unabhängig voneinander 0, 1, 2, 3 oder 4,

q 0,3 bis 20,

R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> unabhängig voneinander C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, und

Y C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>-Alkyliden, C<sub>1</sub>-C<sub>7</sub>-Alkylen, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkylen, C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>-Cycloalkyliden, -O-, -S-, -SO-, SO<sub>2</sub> oder -CO- bedeuten.

13. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 12 enthaltend als Flammenschutzmittel eine Verbindung der Formel



mit  $q$  von 0,3 bis 10.

14. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 13 enthaltend Vinyl(co)polymerisate, Polyalkylenterephthalate oder Mischungen daraus.

15. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 14 enthaltend bis zu 30 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtzusammensetzung, eines Vinyl(co)polymerisats.

16. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 15 enthaltend weitere handelsübliche Additive, wie z.B. Antitropfmittel, Gleit- und Entformungsmittel, Nuklearmittel, Antistatika, Stabilisatoren, Farbstoffe und Pigmente sowie von Talk verschiedene Füll- und Verstärkungstoffe.

17. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 16 enthaltend als Antitropfmittel ein fluoriertes Polyolefin, gegebenenfalls eingesetzt als Koagulat, Prä-

compound oder Masterbatch mit einem Pfropfpolymerisat gemäß Anspruch 7 oder einem Vinyl(co)polymerisat.

- 5 18. Polycarbonatzusammensetzungen enthaltend 50 bis 90 Gew.-% mindestens eines aromatischen Polycarbonats, 1,5 bis 25 Gew.-% mindestens eines Pfropfpolymerisat gemäß Anspruch 9, 2 bis 20 Gew.-% mindestens eines Flammenschutzmittels gemäß Anspruch 11, 0 bis 20 Gew.-% eines Vinyl(co)-polymerisats, und 1 bis 20 Gew.-% eines Talks gemäß der Definition in Anspruch 4, wobei die Summe der Komponenten 100 ergibt.

10

19. Polycarbonatzusammensetzungen enthaltend 50 bis 90 Gew.-% mindestens eines aromatischen Polycarbonats, 1,5 bis 25 Gew.-% mindestens eines Pfropfpolymerisat gemäß Anspruch 9, 2 bis 20 Gew.-% mindestens eines Flammenschutzmittels gemäß Anspruch 12, 0 bis 20 Gew.-% eines Vinyl(co)-polymerisats, und 1 bis 20 Gew.-% eines Talks gemäß der Definition in Anspruch 5, wobei die Summe der Komponenten 100 ergibt.

15

20. Polycarbonatzusammensetzungen gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass sie den UL94V-Test mit V-0 bei einer Wandstärke kleiner oder gleich 1,5 mm bestehen.

20

21. Verfahren zur Herstellung der Polycarbonatzusammensetzungen gemäß Anspruch 1, wobei die einzelnen Komponenten gemischt und bei erhöhter Temperatur compoundiert werden.

25

22. Verwendung der Polycarbonatzusammensetzungen gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, zur Herstellung von Formkörpern bzw. Formteilen jeglicher Art.

23. Formkörper bzw. Formteile, erhältlich aus den Polycarbonatzusammensetzungen gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/12568

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08K13/02 C08L69/00 //(C08K13/02,5:523,3:34)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08K C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 197 53 542 A (BASF AG) 10 June 1999 (1999-06-10) page 12, line 5-15; example 9 page 7, line 1 -page 9, line 57	1-5, 18, 21, 22
X	EP 0 758 003 A (GEN ELECTRIC) 12 February 1997 (1997-02-12) claims 1-6; examples 3,6	1, 21, 22
X	EP 0 893 475 A (KANEKAFUCHI CHEMICAL IND) 27 January 1999 (1999-01-27) example 26	1, 21, 22
X	EP 0 884 366 A (KANEKAFUCHI CHEMICAL IND) 16 December 1998 (1998-12-16) page 11, line 20-25; examples 18-23, 27-31, 33; table 7 page 11, line 15, 16	1, 21, 22

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

6 March 2001

Date of mailing of the international search report

16/03/2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Friederich, P

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/12568

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 19753542 A	10-06-1999	AU 2153499 A WO 9928385 A EP 1051445 A	16-06-1999 10-06-1999 15-11-2000
EP 0758003 A	12-02-1997	JP 9048912 A CN 1152589 A SG 54356 A	18-02-1997 25-06-1997 16-11-1998
EP 0893475 A	27-01-1999	CN 1221441 A WO 9738051 A JP 2000327901 A	30-06-1999 16-10-1997 28-11-2000
EP 0884366 A	16-12-1998	WO 9731980 A	04-09-1997



# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/12568

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C08K13/02 C08L69/00 //(C08K13/02,5:523,3:34)

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08K C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 197 53 542-A (BASF AG) 10. Juni 1999 (1999-06-10) Seite 12, Zeile 5-15; Beispiel 9 Seite 7, Zeile 1 -Seite 9, Zeile 57 ---	1-5,18, 21,22
X	EP 0 758 003 A (GEN ELECTRIC) 12. Februar 1997 (1997-02-12) Ansprüche 1-6; Beispiele 3,6 ---	1,21,22
X	EP 0 893 475 A (KANEKAFUCHI CHEMICAL IND) 27. Januar 1999 (1999-01-27) Beispiel 26 ---	1,21,22
X	EP 0 884 366 A (KANEKAFUCHI CHEMICAL IND) 16. Dezember 1998 (1998-12-16) Seite 11, Zeile 20-25; Beispiele 18-23,27-31,33; Tabelle 7 Seite 11, Zeile 15,16 -----	1,21,22



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

6. März 2001

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

16/03/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Friederich, P

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/12568

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 19753542 A	10-06-1999	AU 2153499 A	16-06-1999
		WO 9928385 A	10-06-1999
		EP 1051445 A	15-11-2000
EP 0758003 A	12-02-1997	JP 9048912 A	18-02-1997
		CN 1152589 A	25-06-1997
		SG 54356 A	16-11-1998
EP 0893475 A	27-01-1999	CN 1221441 A	30-06-1999
		WO 9738051 A	16-10-1997
		JP 2000327901 A	28-11-2000
EP 0884366 A	16-12-1998	WO 9731980 A	04-09-1997